

Satoh et al
Filed 3/23/04
Q80541
10f1

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application: 2003年 3月27日

出願番号 Application Number: 特願2003-088115

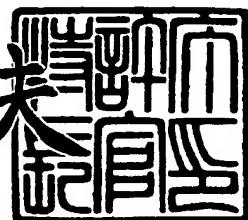
[ST. 10/C]: [JP2003-088115]

出願人 Applicant(s): 住友化学工業株式会社

2003年11月17日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 P155641

【提出日】 平成15年 3月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08L 23/16

C08L 23/08

C08K 3/00

C08K 5/14

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市長浦580番30 三井住友ポリオレフ
イン株式会社内

【氏名】 佐藤 潤

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

【氏名】 谷村 博之

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市長浦580番30 三井住友ポリオレフ
イン株式会社内

【氏名】 五十右 克之

【特許出願人】

【識別番号】 000002093

【氏名又は名称】 住友化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100093285

【弁理士】

【氏名又は名称】 久保山 隆

【電話番号】 06-6220-3405

【選任した代理人】

【識別番号】 100113000

【弁理士】

【氏名又は名称】 中山 亨

【電話番号】 06-6220-3405

【選任した代理人】

【識別番号】 100119471

【弁理士】

【氏名又は名称】 榎本 雅之

【電話番号】 06-6220-3405

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010238

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0212949

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリプロピレン樹脂組成物、その製造方法および射出成形体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が70～120g／10分であるポリプロピレン樹脂組成物であって、プロピレン単独重合体部分とプロピレン－エチレンランダム共重合体部分を含有し、下記要件（A-1）～（A-5）を満足するプロピレン－エチレンブロック共重合体（A）60～80重量%と、メルトフローレート（190℃、2.16kg荷重）が2～10g／10分であるエチレン－1－ブテン共重合体ゴム（B）10～30重量%と、無機充填剤（C）5～20重量%とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物（D）0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して得られるポリプロピレン樹脂組成物。（但し、プロピレン－エチレンブロック共重合体（A）とエチレン－1－ブテン共重合体ゴム（B）と無機充填剤（C）の合計を100重量%とする。）

要件（A-1）メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が100～140g／10分である。

要件（A-2）プロピレン－エチレンランダム共重合体部分の極限粘度が3～5dl/gである。

要件（A-3）プロピレン－エチレンランダム共重合体部分のエチレン含有量が、20～60重量%である。（但し、プロピレン－エチレンランダム共重合体部分の全量を100重量%とする。）

要件（A-4）プロピレン－エチレンランダム共重合体部分の含有量が5～15重量%である。（但し、プロピレン－エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

要件（A-5）プロピレン－エチレンブロック共重合体（A）の全エチレン含有量が3～6.5重量%である。（但し、プロピレン－エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

【請求項2】

メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が70～120g／10分であるポリプロピレン樹脂組成物の製造方法であって、プロピレン単独重合体部分とプロピレン-エチレンランダム共重合体部分を含有し、下記要件（A-1）～（A-5）を満足するプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）60～80重量%と、メルトフローレート（190℃、2.16kg荷重）が2～10g／10分であるエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）10～30重量%と、無機充填剤（C）5～20重量%とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物（D）0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して、ポリプロピレン樹脂組成物を製造する方法。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）と無機充填剤（C）の合計を100重量%とする。）

要件（A-1）メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が100～140g／10分である。

要件（A-2）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度が3～5dl/gである。

要件（A-3）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分のエチレン含有量が、20～60重量%である。（但し、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の全量を100重量%とする。）

要件（A-4）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の含有量が5～15重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

要件（A-5）プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全エチレン含有量が3～6.5重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

【請求項3】

請求項1に記載のポリプロピレン樹脂組成物を射出成形して得られる射出成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリプロピレン樹脂組成物およびその射出成形体に関するものである。更に詳しくは、少量の有機過酸化物を用いて得られ、流動性（メルトフロー率）が高く、射出成形体にした場合に、剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度に優れた射出成形体を得ることができるポリプロピレン樹脂組成物、その製造方法および射出成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

従来から、ポリプロピレン樹脂組成物は、射出成形体に用いられている。例えば、特開昭60-42448号公報または特公平6-8375号公報には、低温耐衝撃性、高成形流動性に優れ、塗装性、高剛性を有し、かつ安価なポリプロピレン樹脂組成物の製造方法として、結晶性エチレン・プロピレンブロック共重合体、エチレン・プロピレン共重合体ゴム、無機充填剤と有機過酸化物からなり、前記ブロック共重合体と前記共重合体ゴムの合計量100重量部に対して、有機過酸化物が0.001～0.5重量部である組成物を170～280℃で加熱処理することを特徴とするポリプロピレン樹脂組成物の製造方法が記載されている。

【0003】

また、特開平8-283487号公報には、非常に高MFR（80g/10min.以上）でありながら、低温における耐衝撃性の低下を最小限に防止し、高剛性、高耐熱性を維持したまま、耐衝撃性、強度に優れているポリプロピレン系樹脂組成物として、MFRが150～1000g/10min.であるポリプロピレン樹脂と、エチレンとアルファオレフィンからなる部分を含む共重合体とを含む組成物であって、組成物全体のMFRが80g/10min.以上のポリプロピレン系樹脂組成物が記載されており、必要に応じて過酸化剤や無機充填剤を混合しても良いことが記載されている。

【0004】

そして、特開平8-302114号公報には、低温衝撃性および耐熱剛性を改

良した熱可塑性樹脂組成物として、プロピレンのホモ重合体および／またはエチレンープロピレンブロック共重合体（ただし、メルトイインデックスが0.5～1.0 g / 10 min.）と、オレフィン系共重合体ゴムからなる混合物を有機過酸化物および架橋助剤の存在下で動的に熱処理した熱処理物を、プロピレンのホモ重合体および／またはエチレンープロピレンブロック共重合体に混合してなることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物が記載されている。

【0005】

しかし、上記の公報等に記載されているポリプロピレン樹脂組成物およびその製造方法においては、有機過酸化物の使用量の削減が求められており、また、ポリプロピレン樹脂組成物の流動性（メルトフローレート）、および、射出成形体の剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度についても、さらなる改良が求められていた。

【0006】

【特許文献1】

特開昭60-42448号公報

【特許文献2】

特公平6-8375号公報

【特許文献3】

特開平8-283487号公報

【特許文献4】

特開平8-302114号公報

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、少量の有機過酸化物を用いて得られ、流動性（メルトフローレート）が高く、射出成形体にした場合に、剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度に優れた射出成形体を得ることができるポリプロピレン樹脂組成物、その製造方法および射出成形体を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明者等は、かかる実情に鑑み、鋭意研究の結果、本発明が、上記の課題を解決できることを見出し、本発明を完成させるに至った。

すなわち、本発明の一は、

メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が70～120g／10分であるポリプロピレン樹脂組成物であって、プロピレン単独重合体部分とプロピレン-エチレンランダム共重合体部分を含有し、下記要件（A-1）～（A-5）を満足するプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）60～80重量%と、メルトフローレート（190℃、2.16kg荷重）が2～10g／10分であるエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）10～30重量%と、無機充填剤（C）5～20重量%とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物（D）0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して得られるポリプロピレン樹脂組成物に係るものである。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）と無機充填剤（C）の合計を100重量%とする。）

要件（A-1）メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が100～140g／10分である。

要件（A-2）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度が3～5dl/gである。

要件（A-3）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分のエチレン含有量が、20～60重量%である。（但し、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の全量を100重量%とする。）

要件（A-4）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の含有量が5～15重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

要件（A-5）プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全エチレン含有量が3～6.5重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

【0009】

そして、本発明の一は、

メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が70～120g／10分であるポリプロピレン樹脂組成物の製造方法であって、プロピレン単独重合体部分とプロピレン-エチレンランダム共重合体部分を含有し、下記要件（A-1）～（A-5）を満足するプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）60～80重量%と、メルトフローレート（190℃、2.16kg荷重）が2～10g／10分であるエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）10～30重量%と、無機充填剤（C）5～20重量%とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物（D）0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して、ポリプロピレン樹脂組成物を製造する方法に係るものである。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とエチレン-1-ブテン共重合体（B）と無機充填剤（C）の合計を100重量%とする。）

要件（A-1）メルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）が100～140g／10分である。

要件（A-2）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度が3～5dl/gである。

要件（A-3）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分のエチレン含有量が、20～60重量%である。（但し、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の全量を100重量%とする。）

要件（A-4）プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の含有量が5～15重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

要件（A-5）プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全エチレン含有量が3～6.5重量%である。（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全量を100重量%とする。）

【0010】

さらに、本発明の一は、

上記のポリプロピレン樹脂組成物を射出成形して得られる射出成形体に係るものである。

【0011】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明で用いられるプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とは、プロピレン単独重合体部分、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分を有する共重合体である。

本発明で用いられるプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）におけるプロピレン単独重合体部分とプロピレン-エチレンランダム共重合体部分の、それぞれの重量割合は、単独重合体部分が95～85重量%であり、ランダム共重合体部分が5～15重量%である（要件（A-4））。好ましくは、単独重合体部分が92～87重量%であり、ランダム共重合体部分が8～13重量%である。

（但し、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）の全重量を100重量%とする。）

ランダム共重合体部分の含有量が5重量%未満の場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがあり、15重量%を超えた場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低くなることがある。

【0012】

ブロック共重合体（A）におけるランダム共重合体部分のエチレン含量（C_{2'}）EPは、20～60重量%であり（要件（A-3））、好ましくは20～40重量%である。（但し、ランダム共重合体部分の全重量を100重量%とする。）

ランダム共重合体部分のエチレン含量（C_{2'}）EPが、20重量%未満の場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがあり、60重量%を超えた場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低下することがある。

【0013】

また、ブロック共重合体（A）におけるランダム共重合体部分の固有粘度[η]EPは、3～5dL/gであり（要件（A-2））、好ましくは3.5～4.5dL/gである。

ランダム共重合体部分の固有粘度[η]EPが、3dL/g未満の場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがあり、5dL/gを超えた場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低下することがある。

【0014】

ブロック共重合体（A）のメルトフローレート（MFR、230℃、2.16 kg荷重）は、100～140 g／10分であり（要件（A-1））、好ましくは110～130 g／10分である。

ブロック共重合体（A）のメルトフローレートが、100 g／10分未満の場合、組成物の流動性が低くなることがあり、140 g／10分を超えた場合、組成物の流動性が高くなりすぎるとともに、組成物や成形体の衝撃強度が不足することがある。

【0015】

ブロック共重合体（A）の全エチレン含量は3～6.5重量%であり、（要件（A-5））、好ましくは5～6.5重量%、より好ましくは5～6.0重量%である。

ブロック共重合体（A）の全エチレン含量が3重量%未満の場合、組成物や成形体の衝撃強度が不足することがあり、6.5重量%を超えた場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低くなることがある。

【0016】

ブロック共重合体（A）の製造方法としては、プロピレン単独重合体部分を第1工程で製造し、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分を第2工程で製造する方法が挙げられる。

そして、公知の重合触媒を用いて、公知の重合方法によって製造する方法が挙げられる。公知の重合触媒としては、例えば、チーグラー触媒やメタロセン触媒が挙げられ、公知の重合方法としては、例えば、スラリー重合法や気相重合法が挙げられる。

【0017】

本発明で用いられるエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）のメルトフローレート（MFR、190℃、2.16 kg荷重）は、2～10 g／10分であり、好ましくは4～8 g／10分である。

共重合体ゴム（B）のメルトフローレートが2 g／10分未満の場合、組成物の流動性が低くなるとともに、曲げ弾性率が低くなることがあり、10 g／10

分を超えた場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがある。

【0018】

また、共重合体ゴム（B）の密度は、衝撃強度やブロック共重合体（A）に対する分散性の観点から、通常、 0.90 g/cm^3 未満であり、好ましくは 0.89 g/cm^3 以下である。

【0019】

共重合体ゴム（B）の製造方法としては、公知の重合触媒を用いて、公知の重合方法による製造方法が挙げられる。公知の重合触媒としては、例えば、バナジウム化合物、有機アルミニウム化合物およびハロゲン化エステル化合物からなるチーグラー・ナッタ触媒系や、チタン原子、ジルコニウム原子またはハフニウム原子に少なくとも1種以上のシクロペンタジエニルアニオン骨格を有する基が配位したメタロセン化合物とアルモキサンあるいはホウ素化合物とを組み合わせた触媒系、いわゆるメタロセン触媒系が挙げられる。

公知の重合方法としては、例えば、炭化水素化合物のような不活性有機溶媒中でエチレンと α -オレフィンを共重合させる方法が挙げられる。

【0020】

本発明で用いられる無機充填剤（C）としては、例えば、タルク、マイカ、ワラスナイト、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸マグネシウム、クレー、アルミナ、シリカ、硫酸カルシウム、炭素繊維、ガラス繊維、金属繊維、けい砂、カーボンブラック、酸化チタン、水酸化マグネシウム、ゼオライト、モリブデン、けいそう土、セリサイト、シラス、水酸化カルシウム、亜硫酸カルシウム、硫酸ソーダ、ベントナイト、黒鉛等が挙げられる。衝撃強度、成形体の光沢や良好な外観を得るという観点から、好ましくは、タルクである。

【0021】

タルクの平均粒子径は、通常、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。ここでタルクの平均粒子径とは、遠心沈降式粒度分布測定装置を用いて水、アルコール等の分散媒中に懸濁させて測定した篩下法の積分分布曲線から求めた50%相当粒子径D50のことを意味する。

【0022】

また、タルクは無処理のまま使用しても良く、ポリプロピレン樹脂との界面接着性を向上させ、ポリプロピレン樹脂に対する分散性を向上させるために、公知のシランカップリング剤、チタンカップリング剤や界面活性剤で表面を処理して使用しても良い。界面活性剤としては、例えば、高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸塩類等が挙げられる。

【0023】

本発明で用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）と、エチレンー1-ブテン共重合体ゴム（B）と、無機充填剤（C）とを含有する混合物におけるブロック共重合体（A）、共重合体ゴム（B）および無機充填剤（C）のそれぞれの含有量は、ブロック共重合体（A）が60～80重量%であり、共重合体ゴム（B）が10～30重量%であり、無機充填剤（C）が5～20重量%である。但し、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）とエチレンー1-ブテン共重合体ゴム（B）と無機充填剤（C）の合計を100重量%とする。

【0024】

ブロック共重合体（A）、共重合体ゴム（B）および無機充填剤（C）のそれぞれの含有量として、好ましくは、ブロック共重合体（A）が60～80重量%であり、共重合体ゴム（B）が10～30重量%であり、無機充填剤（C）が5～20重量%である。

【0025】

ブロック共重合体（A）が60重量%未満の場合、組成物の流動性が低くなるとともに、曲げ弾性率が低くなることがあり、80重量%を超えた場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがある。

共重合体ゴム（B）が10重量%未満の場合、組成物や成形体の衝撃強度が低くなることがあり、30重量%を超えた場合、組成物の流動性が低くなるとともに、組成物や成形体の曲げ弾性率が低くなることがある。

無機充填剤（C）が5重量%未満の場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低くなることがあり、20重量%を超えた場合、組成物や成形体の衝撃強度が低下することがある。

【0026】

本発明で用いられる有機過酸化物（D）としては、例えば、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキシン-3, 1, 3-ビス（t-ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン、1, 1-ジ（t-ブチルパーオキシ）-3, 5, 5-トリメチルシクロヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ（パーオキシベンゾイル）ヘキシン-3、および、ジクミルパーオキシド等が挙げられる。好ましくは、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサンである。

【0027】

有機過酸化物（D）の含有量は、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）と、エチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）と、無機充填剤（C）とを含有する混合物100重量部に対して、0.01～0.04重量部であり、好ましくは0.01～0.03重量部である。

有機過酸化物（D）の含有量が、0.01重量部未満の場合、組成物の流動性が低くなることがあり、0.04重量部を超えた場合、組成物や成形体の曲げ弾性率が低くなることがある。

【0028】

本発明のポリプロピレン樹脂組成物は、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）と、エチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）と、無機充填剤（C）とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物（D）0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して得られるポリプロピレン樹脂組成物である。加熱温度として、好ましくは180～250℃である。

加熱温度が、170℃未満の場合、組成物の混練が不足することがあり、280℃を超えた場合、組成物の成分が分解することがある。

【0029】

本発明のポリプロピレン樹脂組成物のメルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）は、70～120g／10分であり、好ましくは、70～100g／10分である。

ポリプロピレン樹脂組成物のメルトフローレートが、70g／10分未満の場

合、流動性が不足し、成形時に材料の充填不足が発生することがあり、120g／10分を超えた場合、成形時にバリ等の不良が出やすくなることがある。

【0030】

本発明のポリプロピレン樹脂組成物の製造方法は、各成分を混合し、加熱し、混練する方法である。混練に用いられる装置としては、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、熱ロール等が挙げられる。混練の温度は、170～280℃であり、時間は、通常、1～20分である。また、各成分の混合は同時に行なってもよく、分割して行なってもよい。

【0031】

各成分を分割して混合する方法としては、例えば、次の（1）～（5）のような方法が挙げられる。

- (1) プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）と無機充填剤（C）を混練した後、エチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）を添加する方法。
- (2) 予め、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）に無機充填剤（C）を高濃度に混練してマスターbatchとし、それを別途プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）やエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）で希釈しながら混練する方法。
- (3) プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）を混練した後、無機充填剤（C）を添加し混練する方法。
- (4) 予め、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）にエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）を高濃度に混練してマスターbatchとし、それにプロピレン-エチレンブロック共重合体（A）、無機充填剤（C）を添加し混練する方法。
- (5) 予め、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）と無機充填剤（C）、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）とエチレン-1-ブテン共重合体ゴム（B）をそれぞれ混練しておき、最後にそれらを合わせて混練する方法。

【0032】

本発明のポリプロピレン系樹脂組成物には、必要に応じて、酸化防止剤、紫外線吸収剤、顔料、帯電防止剤、銅害防止剤、難燃剤、中和剤、発泡剤、可塑剤、

造核剤、気泡防止剤、架橋剤等の添加剤を配合しても良い。

【0033】

本発明の射出成形体は、本発明のポリプロピレン系樹脂組成物を、公知の射出成形法によって、成形して得られるものである。

本発明の射出成形体の用途としては、例えば、自動車用部品、電気製品・電子製品用部品、建材部品等が挙げられ、好ましくは自動車用部品であり、より好ましくはバンパー、インストルメンタルパネル、ドアトリムである。

【0034】

【実施例】

以下、実施例および比較例により本発明を説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

実施例および比較例における物性値の測定法を以下に示した。

(1) メルトフローレート (MFR、単位：g／10分)

JIS-K-6758に規定された方法に従い、測定した。特に断りのない限り、測定温度は230℃であり、荷重は2.16kgであった。

【0035】

(2) 曲げ弾性率 (単位：MPa)

ASTM-D790に規定された方法に従い、測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは3.2mmであり、スパン長さ50mm、荷重速度2mm/minの条件で曲げ弾性率を評価した。測定温度は23℃を行った。

【0036】

(3) アイゾット衝撃強度 (IZOD、単位：kJ/m²)

ASTM-D256に規定された方法に従い、測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは3.2mmであり、成形の後にノッチ加工されたノッチ付きの衝撃強度を評価した。測定温度は23℃および-30℃を行った。

【0037】

(4) エチレン含量 (単位：重量%)

エチレン含量は、プレスシートを作製し、赤外吸収スペクトルを測定して得られるメチル基（-CH₃）およびメチレン基（-CH₂-）の特性吸収の吸光度を用いて検量線法により求めた。

【0038】

(5) 極限粘度 ([η]、単位: dl/g)

ウベローデ型粘度計を用いて濃度0.1、0.2および0.5 g/dlの3点について還元粘度を測定した。極限粘度は、「高分子溶液、高分子実験学11」(1982年共立出版株式会社刊)第491頁に記載の計算方法、すなわち、還元粘度を濃度に対しプロットし、濃度をゼロに外挿する外挿法によって求めた。ポリプロピレンについては、溶媒としてテトラリンを用い、温度135℃で評価した。

【0039】

(6) プロピレン-エチレンブロック共重合体におけるプロピレン-エチレンランダム共重合体部分の全ブロック共重合体に対する重量比率(X、重量%)

プロピレン-エチレンブロック共重合体において、プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の全ブロック共重合体に対する重量比率X(重量%)は、プロピレン単独重合体部分と全ブロック共重合体の各々の結晶融解熱量を測定することにより、次式から計算で求めた。

$$X = 1 - (\Delta H_f)_T / (\Delta H_f)_P$$

$(\Delta H_f)_T$: ブロック共重合体全体の融解熱量 (cal/g)

$(\Delta H_f)_P$: プロピレンホモポリマー部分の融解熱量 (cal/g)

【0040】

(7) プロピレン-エチレンブロック共重合体におけるプロピレン-エチレンランダム共重合体部分のエチレン含量(単位: 重量%)

プロピレン-エチレンブロック共重合体におけるプロピレン-エチレンランダム共重合体部分のエチレン含量は、赤外線吸収スペクトル法により全ブロック共重合体におけるエチレン含量(重量%)で測定し、次式から計算で求めた。

$$(C2') EP = (C2') T / X$$

$(C2') T$: 全ブロック共重合体におけるエチレン含量(重量%)

(C2') EP：プロピレンーエチレンランダム共重合体部分のエチレン含量
(重量%)

【0041】

(8) プロピレンーエチレンブロック共重合体におけるプロピレンーエチレンランダム共重合体部分の極限粘度 ($[\eta]$ EP、単位： d l/g)

プロピレンーエチレンブロック共重合体におけるプロピレンーエチレンランダム共重合体部分の極限粘度 $[\eta]$ EPは、プロピレン単独重合体部分と全ブロック共重合体の各々の極限粘度を測定することにより、次式から計算で求めた。

$$[\eta]_{\text{EP}} = [\eta]_{\text{T}} / X - (1/X - 1) [\eta]_{\text{P}}$$

$[\eta]_{\text{P}}$ ：プロピレン単独重合体部分の極限粘度 (d l/g)

$[\eta]_{\text{T}}$ ：ブロック共重合体全体の極限粘度 (d l/g)

なお、プロピレンーエチレンブロック共重合体の第1セグメントであるプロピレン単独重合体部分の極限粘度 $[\eta]_{\text{P}}$ は、その製造時に、第一工程であるプロピレン単独重合体部分の製造後に重合槽内より取り出し、取り出されたプロピレン単独重合体から $[\eta]_{\text{P}}$ を求めた。

【0042】

(9) 加熱変形温度 (HDT、単位： $^{\circ}\text{C}$)

A S T M-D 6 4 8 に規定された方法に従って、測定した。荷重は 0. 4 5 M Pa とした。

【0043】

(10) ロックウェル硬度 (HR)

A S T M-D 7 8 5 に規定された方法に従って、測定した。測定値は R スケールで表示した。

【0044】

実施例1および比較例1、2、3

(試料)

(A) プロピレンーエチレンブロック共重合体

(1) プロピレンーエチレンブロック共重合体 (P1)

三井住友ポリオレフィン（株）製、商品名三井住友ポリプロ J 60 A P を用い

た。

MFR (230°C、2.16 kg荷重) は、115 g／10分であった。

プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度 ([η] EP) は 3.7 dL/g であり、プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P1) に対する重量割合は 10.0 重量% であり、エチレン含量は 40.0 重量% であった。プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P1) に対する全エチレン含量は 6.0 重量% であった。

【0045】

(2) プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P2)

三井住友ポリオレフィン（株）製、商品名三井住友ポリプロJ739Cを用いた。

MFR (230°C、2.16 kg荷重) は、86 g／10分であった。

プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度 ([η] EP) は 5.5 dL/g であり、プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P2) に対する重量割合は 10 重量% であり、エチレン含量は 31 重量% であった。プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P2) に対する全エチレン含量は 4.1 重量% であった。

【0046】

(3) プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P3)

三井住友ポリオレフィン（株）製、商品名三井住友ポリプロJ739Eを用いた。

MFR (230°C、2.16 kg荷重) は、54 g／10分であった。

プロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度 ([η] EP) は 6.6 dL/g であり、プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P3) に対する重量割合は 10 重量% であり、エチレン含量は 29 重量% であった。プロピレン-エチレンブロック共重合体 (P3) に対する全エチレン含量は 4.1 重量% であった。

【0047】

(B) エチレン-1-ブテン共重合体ゴム (R1)

エチレン-1-ブテン共重合体ゴムとしては、三井化学（株）社製、商品名タフマーA6050を用いた。MFR（190°C、2.16kg荷重）は、6g/10分であった。

【0048】

(C) 無機充填剤 (T1)

無機充填剤としては、タルク（松村産業社製、商品名ハイフィラー5000P JT7）を用いた。

【0049】

(D) 有機過酸化物 (PO1)

有機過酸化物としては、日本油脂製パーへキサ25B（2,5-ジメチル-2,5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサン）を用いた。

【0050】

実施例1

（ポリプロピレン樹脂組成物の製造）

プロピレン-エチレンブロック共重合体（P1）69重量%、エチレン-1-ブテン共重合体ゴム（R1）21重量%、タルク（T1）10重量%を含有する混合物100重量部に、有機過酸化物（PO1）0.016重量部を加え、250°Cで加熱し、これらを二軸混練押出機（日本製鋼所社製TEX30α）を用いて、押出量50kg/hr、スクリュー回転数550rpm、ベント吸引下で、ポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物のMFRは86g/10分であった。

【0051】

（射出成形体の製造）

物性評価用試験片は、次の射出成形条件下で作製した。上記で得られたポリプロピレン樹脂組成物を、新潟鐵工所製NN220α型射出成形機を用いて、成形温度180°C、金型冷却温度40°C、射出時間20sec、冷却時間25secで射出成形を行った。得られた射出成形体の物性を測定し、その結果を表1に示した。

【0052】

比較例 1

実施例 1において、プロピレンーエチレンブロック共重合体（P 1）をプロピレンーエチレンブロック共重合体（P 2）に変更し、有機過酸化物（P O 1）の配合量を 0. 045 重量部に変更した以外は、実施例 1と同様にして、ポリプロピレン樹脂組成物および射出成形体を得た。ポリプロピレン樹脂組成物のM F R（230℃、2. 16 kg 荷重）は 74 g／10 分であった。得られた射出成形体の物性を測定し、その結果を表 1 に示した。

【0053】

比較例 2

実施例 1において、プロピレンーエチレンブロック共重合体（P 1）をプロピレンーエチレンブロック共重合体（P 3）に変更し、有機過酸化物（P O 1）の配合量を 0. 08 重量部に変更した以外は、実施例 1と同様にして、ポリプロピレン樹脂組成物および射出成形体を得た。ポリプロピレン樹脂組成物のM F R（230℃、2. 16 kg 荷重）は 78 g／10 分であった。得られた射出成形体の物性を測定し、その結果を表 1 に示した。

【0054】

比較例 3

実施例 1において、プロピレンーエチレンブロック共重合体（P 1）76 重量%、エチレンー1-ブテン共重合体ゴム（R 1）14 重量%、タルク（T 1）10 重量%とし、有機過酸化物を用いないこと以外は、実施例 1と同様にして、ポリプロピレン樹脂組成物および射出成形体を得た。ポリプロピレン樹脂組成物のM F R（230℃、2. 16 kg 荷重）は 82 g／10 分であった。得られた射出成形体の物性を測定し、その結果を表 1 に示した。

【0055】

【表1】

	MFR (g/10分)	曲げ弾性率 (MPa)	IZOD (KJ/m ²)	HDT (℃)	ロックウェル硬度 (HR)
実施例1	86	1520	40	131	56
比較例1	74	1161	40	119	53
比較例2	78	1109	17	111	50
比較例3	82	1664	10	124	72

【0056】

本発明の要件を満足する実施例1は、少量の有機過酸化物を用いて得られたものであって、流動性（メルトフローレート）が高く、射出成形体の剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度に優れたものであることが分かる。

これに対して、本発明の要件であるプロピレン-エチレンブロック共重合体のメルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）およびプロピレン-エチレンランダム共重合体部分の極限粘度を満足しない比較例1は、剛性および加熱変形温度が不充分であり、比較例2は、剛性、衝撃強度および加熱変形温度が不充分であり、また、有機過酸化物を用いない比較例3では、衝撃強度が不充分であることが分かる。

【0057】

【発明の効果】

以上、詳述したとおり、本発明によれば、少量の有機過酸化物を用いて得られ、流動性（メルトフローレート）が高く、射出成形体にした場合に、剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度に優れた射出成形体を得ることができるとリプロビレン樹脂組成物、および、その射出成形体を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 少量の有機過酸化物を用いて得られ、流動性が高く、剛性と耐衝撃性のバランス、加熱変形温度および硬度に優れたポリプロピレン樹脂組成物および形体提供する。

【解決手段】 プロピレン単独重合体部分とプロピレン-エチレンランダム共重合体部分を含有し、前記共重合体部分の極限粘度が3～5 d l/g、前記共重合体部分のエチレン含量が20～60重量%、前記共重合体部分の含有量が5～15重量%、そして、全エチレン含量が3～6.5重量%、MFRが100～140 g/10分であるプロピレン-エチレンブロック共重合体と、MFRが2～10 g/10分であるエチレン-1-ブテン共重合体ゴムと、無機充填剤とを含有する混合物100重量部に対して、有機過酸化物0.01～0.04重量部を加え、170～280℃で加熱し、混練して得られ、MFRが70～120 g/10分であるポリプロピレン樹脂組成物。

【選択図】 なし

特願2003-088115

出願人履歴情報

識別番号 [000002093]

1. 変更年月日 1990年 8月28日
[変更理由] 新規登録
住 所 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
氏 名 住友化学工業株式会社